

JP10223367 pdf Ref A I AM
(7)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-223367

(43) 公開日 平成10年(1998) 8月21日

(51) Int.Cl.⁵

識別記号

F I

H 0 5 B 33/02

H 0 5 B 33/02

F 2 1 V 5/02

F 2 1 V 5/02

A

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願平9-21528

(22) 出願日

平成9年(1997) 2月4日

(71) 出願人 000005968

三菱化学株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72) 発明者 唐沢 稔江

茨城県稲敷郡阿見町中央8-3-1 三菱
化学株式会社筑波研究所内

(72) 発明者 金井 浩之

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内

(74) 代理人 弁理士 重野 剛

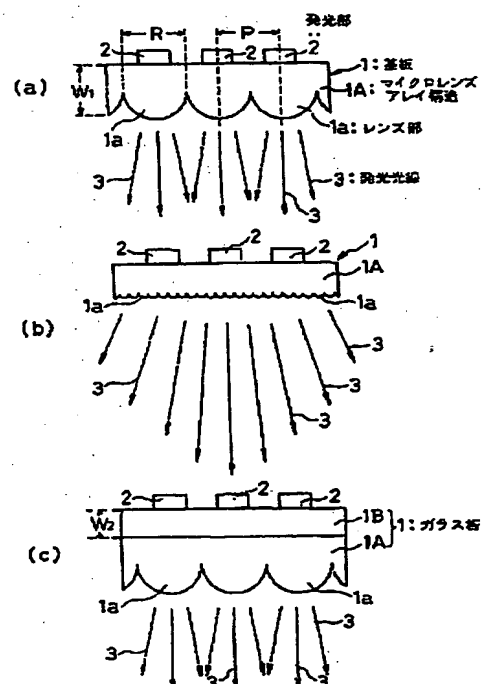
(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 軽量で、低電圧駆動においても高輝度を実現する有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】 基板、陽極、有機発光層及び陰極よりなる有機電界発光素子において、基板1としてプラスチック製マイクロレンズアレイ構造1Aを有する基板を用いる。

【効果】 通常の平板状の基板を用いた場合には、発光部の発光光線はそのまま基板を通過するのに対し、マイクロレンズアレイ構造1Aの基板1であれば、発光部2の発光光線3はマイクロレンズアレイ構造の凸部に集光される。このため、高輝度化が図れる。また、プラスチック製マイクロレンズアレイ構造であれば軽量化が可能である。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板の一方の板面上に、陽極、有機発光層及び陰極が積層された有機電界発光素子であって、該基板がプラスチック製マイクロレンズアレイ構造を有することを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項2】 マイクロレンズアレイ構造が、光硬化性樹脂からなることを特徴とする請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 光硬化性樹脂が、多官能（メタ）アクリレート化合物含有光硬化性液状モノマーを光硬化した光硬化性樹脂であることを特徴とする請求項2に記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 マイクロレンズアレイ構造が、マスクを介した露光により製造されることを特徴とする請求項1ないし3のいずれか1項に記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 基板が、ガラス基板上にマイクロレンズアレイシートを積層したものであることを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1項に記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は有機電界発光素子に関する。詳しくは、高輝度化された有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 最近の有機電界発光素子は、耐久性の向上、フルカラー化のための正孔輸送層、発光層等の材料や層構造の開発により、かなり実用的となってきた。しかし、耐久性向上のために、低電圧駆動としたり、フルカラー化のためにカラーフィルター等を使用すると輝度が低下するという問題があった。近年、高発光効率で安定性に優れた色素の探索が行われているが、色素の改良だけでは充分なものが得られていないのが現状である。

【0003】 また、有機電界発光素子の基板としては、光学特性、機械的強度等の特性から、通常、ガラス基板が使用されている。そのため、有機電界発光素子の軽量化、薄膜化に限界がある上に、生産性の面でも成形性、加工性に問題があった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、低電圧駆動においても高輝度を実現する有機電界発光素子を提供することを目的とする。本発明はまた、有機電界発光素子の軽量化を実現することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明の有機電界発光素子は、基板の一方の板面上に、陽極、有機発光層及び陰極が積層された有機電界発光素子であって、該基板がプラスチック製マイクロレンズアレイ構造を有することを特徴とする。

【0006】 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、プラスチック製マイクロレンズアレイ構造を有機電界発光素子に組み込むことで、軽量で、高輝度、低電圧の有機電界発光素子を実現できることを見出し、本発明に到達した。

【0007】 即ち、通常の平板状の基板を用いた場合には、発光部の発光光線はそのまま基板を通過するのに対し、プラスチック製マイクロレンズアレイ構造の基板であれば、発光部の発光光線はマイクロレンズアレイ構造の凸部に集光される。このため、高輝度化が図れる。また、プラスチック製マイクロレンズアレイ構造であれば軽量化が可能である。

【0008】 このマイクロレンズアレイ構造は、光硬化性樹脂、特に、多官能（メタ）アクリレート化合物含有光硬化性液状モノマーを光硬化した光硬化性樹脂よりなることが好ましい。なお、本明細書において、「（メタ）アクリレート」は「アクリレート及び／又はメタクリレート」を示す。後述の「（メタ）アクリロイル」についても同様である。

【0009】 また、マイクロレンズアレイ構造は、マスクを介した露光により製造されることが好ましい。

【0010】 本発明に係る基板は、ガラス基板上にマイクロレンズアレイシートを積層したものとすることができる。

【0011】

【発明の実施の形態】 以下に、図面を参照して、本発明の有機電界発光素子の実施の形態を詳細に説明する。

【0012】 まず、図1、2を参照して本発明に係るプラスチック製マイクロレンズアレイ構造を有する基板について説明する。

【0013】 図1(a)～(c)は本発明に係る基板の構造及び集光作用を説明する模式図であり、図2はマイクロレンズアレイ構造の形成方法の一例を示す斜視図である。

【0014】 本発明に係るマイクロレンズアレイ構造とは、図1(a)～(c)に示す如く、断面円弧状の微小レンズ部1aが平面状に配列した構造を指し、より具体的には、例えば、直径（図1(a)のR）が0.1～10,000 μm 、好ましくは1～5,000 μm の微小レンズ部1aが、0.1～10,000 μm 、好ましくは1～5,000 μm のピッチ（図1(a)のP）で並列されたものである。この厚み（図(a)の W_1 ）は10～10,000 μm 、好ましくは100～2,000 μm である。

【0015】 なお、発光光線の集光の目的には、図1(a)～(c)に示す如く、基板1の陽極、有機発光層及び陰極が積層された発光部2形成面と反対側に凸となるマイクロレンズアレイ構造1Aとする。

【0016】 レンズ部1aの形状は、図1(a)～(c)に示す如く、断面半円形状のものに限らず、断面

円弧形状の凸レンズ状であれば良く、この場合には、曲率半径が0.05~13,000,000 μ m、好ましくは0.5~3,000,000 μ mでレンズ径が0.1~10,000 μ m、好ましくは1~5,000 μ mであれば良い。

【0017】本発明においては、図1(a)、(b)に示す如く、片面にマイクロレンズアレイ構造1Aを持つように基板1そのものをプラスチックで成形してもよく、図1(c)に示す如く、ガラス板1B上にプラスチック製マイクロレンズアレイ構造1Aを形成するか、或いはガラス板1Bに別途製造したマイクロレンズアレイ構造1Aのシートを積層して基板1としても良い。この場合、ガラス板1Bの厚み W_2 は300~5,000 μ mであることが好ましい。

【0018】図3に示す如く、従来の有機電界発光素子における平板状の基板11であれば、発光部12からの平面発光された発光光線13はそのまま通過するため、拡散されたままである。これに対して、マイクロレンズアレイ構造を有する本発明に係る基板1であれば、図1(a)~(c)に示す如く、発光部2からの発光光線3は凸型マイクロレンズアレイ構造1Aの部分で集光され、その結果として、有機電界発光素子の高輝度化が達成される。

【0019】本発明において、マイクロレンズアレイ構造はプラスチック、特に好ましくは光硬化性樹脂で形成される。

【0020】光硬化性樹脂は、光硬化性液状モノマー及び光重合開始剤等を含有する光硬化性液状モノマー組成物を光硬化することで得られる。

【0021】この光硬化性液状モノマーとしては、光照射によって重合硬化し、透明な重合体を形成するものであればよく、特に限定されないが、一般には、(メタ)アクリレート系化合物が適している。その中でも、トリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ヘキサジオールジ(メタ)アクリレート、2,2-ビス[4-(メタ)アクリロイルオキシフェニル]プロパン、2,2-ビス[4-(2-(メタ)アクリロイルオキシエトキシ)]フェニルプロパン、p-ビス[β -(メタ)アクリロイルオキシエチルチオ]キシリレン、4,4'-ビス[β -(メタ)アクリロイルオキシエチルチオ]ジフェニルスルホン、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ウレタンアクリレート、エポキシアクリレート等の多官能(メタ)アクリレート類、及びこれらのモノマーと共重合可能な単官能モノマーとの混合物、またこれらの多官能(メタ)アクリレート化合物と付加重合可能なポリチオールとの混合物等が好適である。なお、上記単官能モノマーとしては、例えば、メチル(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレートなどが挙げられ、ポリチオールとしては、例えば、ペンタエリスリトールテトラキス(β -チオプロピオネー

ト)、トリス[2-(β -チオプロピオニルオキシ)エチル]イソシアヌレートなどが挙げられる。

【0022】これらのうち、特に、屈折率(対空気)が1.50以上、好ましくは1.55以上、特に好ましくは1.58以上の重合体を生成するモノマーが選択される。

【0023】これらの光硬化性液状モノマーを硬化させる際に使用される光重合開始剤としては公知のものが挙げられ、これらは2種以上を併用しても良い。光重合開始剤としては、例えば、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィン酸メチルエステル、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、ベンゾフェノン、ジフェノキシベンゾフェノンなどが挙げられる。

【0024】硬化を速やかに完結させる目的で、光硬化と熱硬化を併用する場合には、ベンゾイルパーオキシド、ジイソプロピルパーオキシカーボネート、t-ブチルパーオキシ(2-エチルヘキサノエート)等公知の熱重合開始剤を添加することができる。

【0025】また、必要に応じ、光硬化性液状モノマー組成物に酸化防止剤、紫外線吸収剤、着色剤などを配合することもできる。

【0026】光硬化させることで、光硬化性樹脂よりなるマイクロレンズアレイ構造を形成するには、例えば、上記光硬化性液状モノマー組成物をマイクロレンズアレイ構造を一部に有する板状形状の金型に流し込み、露光することによって行うことができる。より具体的には、マイクロレンズアレイ形状の板と平板状の板との間に、光硬化性液状モノマー組成物を流し込み、平板状の板側から光照射することで光硬化させる。光硬化して得られた光硬化性樹脂成形体には、マイクロレンズアレイ状の板側にマイクロレンズアレイ構造が形成される(以下、この方法を「金型転写法」と称す。)

【0027】この場合、図2に示すように、レンズ部形成部に対応する部分4Aのみが光が透過するネガ型マスクパターン4をマイクロレンズアレイ状の板の代わりに用いて光硬化性液状モノマー組成物5を露光することで、より小さなレンズ部5Aを有するマイクロレンズアレイ形状を形成することもできる。即ち、このようなネガ型マスクパターン4を用いて、光硬化性液状モノマー組成物5のレンズ5A形成部のみならずそれ以外の部分よりも多い光を当てることで、後述する如く、この部分が凸状に膨らんだレンズ5Aを形成することができる(以下、この方法を「部分的照射法」と称す場合がある。)。このネガ型マスクパターン4を使用して部分的照射する方法としては、1段目に、このネガ型マスクパターン4を介して露光し、更に2段目に全面露光(マスクパターン4をはずした露光或いは、裏面側からの露光)する2段階露光方法、或いは、マスクパターン4側と裏面側から同時露光する方法などが挙げられる。

【0028】この部分的照射法に使用されるネガ型マスクパターンは、写真撮影法、蒸着法、印刷等の適宜な方式で得ることができる。マスクパターンをのせる基材としてはガラス板が好ましいが、ポリマーフィルムや紙製のものをを用いても良いし、それらをガラス等の固い透明材に貼り合わせても良い。パターンが描かれたマスク面は、注液型の内面に配置されても、外側の面に配置されても良いが、パターンの良好な転写性を得るためには、内部側即ち光硬化性液状モノマー組成物と接する面に配置されるのが好ましい。この場合、光硬化性液状モノマー組成物に侵されることのないようマスクのリサイクルを考慮して、ガラス製のクロム蒸着マスクを使用することが望ましい。

【0029】光硬化性液状モノマー組成物の光重合の際の硬化収縮は、照射による重合度の増加に伴って進行する。従って、ネガ型マスクパターンを通して部分的照射を行うと、照射されたマスクされていない部分がまず硬化し、その硬化収縮の影響を受けて、マスクされている照射されていない或いは照射量の少ない部分がくぼむ。即ち、マスクされていない部分が凸状の突起部を形成する。この凸状部の形状は、照射光がマスクを通る際の回折現象により、マスクされている部分にも光が回り込むため、球面或いは非球面状（球面類似形状）のレンズ部となる。

【0030】従って、部分的照射することによって、表面の凹凸を形成した後、ネガ型マスクパターンをはずして全面に照射を行うことにより硬化を完了させて、最終的なマイクロレンズアレイ構造を得ることができる。或いは、光硬化性液状モノマー組成物を介してネガ型マスクパターンと反対側の型に光を透過するガラス等の材質を用い、この面より全面に照射して硬化を完了することができ、この場合には、片面の凹凸形成と全面の硬化を同時に行うこともできる。

【0031】前記金型転写法、及び上記部分的照射法のどちらにおいても、照射の光源としては、光硬化性液状モノマー組成物や光重合開始剤の特性波長に応じて適宜選択することができる。照射の光源は、一般には、高圧水銀灯、メタルハライドランプ、ショートアークランプ等の紫外線光源を用いて、平行光、散乱光、の形で使用されるが、光増感剤との併用でレーザー等の可視、赤外光源の使用も可能である。

【0032】照射に際しては、硬化を速やかに完了させる目的で、注液された型全体を加熱してもよく、更に熱重合開始剤を添加して硬化を促進することも可能である。

【0033】また、光学歪を更に低減させるために、硬化後若干の加熱によるアニール等の処理を行ってもよい。また、ハードコート、反射防止コート等の表面処理を行うことも可能である。

【0034】次に、図4～6を参照して、このようなプ

ラスチック製マイクロレンズアレイ構造を有する基板を用いた本発明の有機電界発光素子の構成を説明する。

【0035】図4～6は本発明の有機電界発光素子の構造例を示す模式的断面図であり、図中、1は基板、6は陽極、7は有機発光層、7aは正孔輸送層、7bは電子輸送層、7cは正孔注入層、8は陰極、10、10A、10Bは有機電界発光素子である。

【0036】基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであり、光学特性、耐熱性、表面精度、機械的強度、軽量性、ガスバリア性などの特性に優れていることが要求される。

【0037】本発明においては、この基板1として、図1(a)～(c)に示す如く、これらの特性に優れたプラスチック製マイクロレンズアレイ構造或いはガラス板とマイクロレンズアレイ構造との積層体を用いる。

【0038】なお、基板は、ガスバリア性をより高める目的で、少なくともその片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けても良い。

【0039】基板1上に形成された陽極6は、有機発光層7への正孔注入の役割を果たすものである。この陽極6は、通常、アルミニウム、金、銀、白金、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウム及び/又はスズの酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロゲン化金属、カーボンブラック、或いは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子など、好ましくは、インジウム・スズ酸化物により形成される。陽極6の形成は通常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われることが多い。銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末などを用いる場合には、これを適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板1上に塗布することにより陽極6を形成することもできる。また、導電性高分子を用いる場合には、電解重合により直接基板1上に薄膜を形成するか、基板1上に導電性高分子を塗布することにより、陽極6を形成することもできる(Appl. Phys. Lett., 60巻, 2711頁, 1992年)。陽極6は異なる物質を積層して形成することも可能である。

【0040】陽極6の厚みは、透明性の要求の有無により異なる。透明性が要求とされる場合は、可視光の透過率を、通常、60%以上、好ましくは80%以上とすることが望ましく、この場合、厚みは、通常、5～1000nm、好ましくは10～500nm程度である。陽極6が不透明でよい場合には、基板1と同一材料であってもよい。また、陽極6の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

【0041】陽極6の上に形成される有機発光層7は、電界が与えられた電極間において、陽極6から注入された正孔と陰極8から注入された電子を効率よく輸送して再結合させ、かつ、再結合により効率よく発光する材料

から形成される。通常、この有機発光層7は発光効率の向上のために、図5に示す様に、正孔輸送層7aと電子輸送層7bに分割した機能分離型にすることが行われる(Appl. Phys. Lett., 51巻, 913頁, 1987年)。

【0042】図5に示す機能分離型有機電界発光素子10Aにおいて、正孔輸送層7aの材料としては、陽極6からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率よく輸送することができる材料であることが必要である。そのためには、イオン化ポテンシャルが小さく、しかも正孔移動度が大きく、更に安定性に優れ、製造時や使用時にトラップとなる不純物が発生しにくいことが要求される。

【0043】このような正孔輸送材料としては、例えば、1,1-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン等の3級芳香族アミノユニットを連結した芳香族ジアミン化合物(特開昭59-194393号公報)、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルで代表される2個以上の3級アミンを含み2個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族アミン(特開平5-234681号公報)、トリフェニルベンゼンの誘導体でスターバースト構造を有する芳香族トリアミン(米国特許第4,923,774号)、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)ビフェニル-4,4'-ジアミン等の芳香族ジアミン(米国特許第4,764,625号)、 $\alpha,\alpha,\alpha',\alpha'$ -テトラメチル- α,α' -ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-*p*-キシレン(特開平3-269084号公報)、分子全体として立体的に非対称なトリフェニルアミン誘導体(特開平4-129271号公報)、ビレニル基に芳香族ジアミノ基が複数個置換した化合物(特開平4-175395号公報)、エチレン基で3級芳香族アミノユニットを連結した芳香族ジアミン(特開平4-264189号公報)、スチリル構造を有する芳香族ジアミン(特開平4-290851号公報)、チオフェン基で芳香族3級アミノユニットを連結したもの(特開平4-304466号公報)、スターバースト型芳香族トリアミン(特開平4-308688号公報)、ベンジルフェニル化合物(特開平4-364153号公報)、フルオレン基で3級アミンを連結したもの(特開平5-25473号公報)、トリアミン化合物(特開平5-239455号公報)、ビスジピリジルアミノビフェニル(特開平5-320634号公報)、N,N,N'-トリフェニルアミン誘導体(特開平6-1972号公報)、フェノキサジン構造を有する芳香族ジアミン(特開平7-138562号公報)、ジアミノフェニルフェナントリジン誘導体(特開平7-252474号公報)、ヒドラゾン化合物(特開平2-311591号公報)、シラザン化合物(米国特許第4,950,950号公報)、シラナミン

誘導体(特開平6-49079号公報)、ホスファミン誘導体(特開平6-25659号公報)、キナクリドン化合物等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよく、また、必要に応じて2種以上を混合して用いてもよい。

【0044】なお、上記の化合物以外に、正孔輸送層7aの材料として、ポリビニルカルバゾールやポリシラン(Appl. Phys. Lett., 59巻, 2760頁, 1991年)、ポリフォスファゼン(特開平5-310949号公報)、ポリアミド(特開平5-310949号公報)、ポリビニルトリフェニルアミン(特開平7-53953号公報)、トリフェニルアミン骨格を有する高分子(特開平4-133065号公報)、トリフェニルアミン単位をメチレン基等で連結した高分子(Synthetic Metals, 55-57巻, 4163頁, 1993年)、芳香族アミンを含有するポリメタクリレート(J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed., 21巻, 969頁, 1983年)等の高分子材料を用いることができる。

【0045】正孔輸送層7aは、これらの正孔輸送材料を塗布法又は真空蒸着法により成膜することにより、前記陽極6上に積層形成される。

【0046】塗布法の場合は、正孔輸送材料の1種又は2種以上と、必要により正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加し、溶剤に溶解して塗布溶液を調製し、これをスピンコート法などの方法により陽極6上に塗布、乾燥して有機正孔輸送層7aを形成する。この場合、バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂の添加量が多いと正孔移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、通常、50重量%以下が好ましい。

【0047】一方、真空蒸着法の場合には、正孔輸送材料を真空容器内に設置されたルツボに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで 10^{-4} Pa程度にまで排気した後、ルツボを加熱して、正孔輸送材料を蒸発させ、ルツボに対向配置した基板1上の陽極6上に正孔輸送層7aを形成する。

【0048】このようにして正孔輸送層7aを形成する場合、更に、アクセプタとして、芳香族カルボン酸の金属錯体及び/又は金属塩(特開平4-320484号公報)、ベンゾフェノン誘導体及びチオベンゾフェノン誘導体(特開平5-295361号公報)、フラーレン類(特開平5-331458号公報)等を 10^{-3} ~10重量%の濃度でドーブして、フリーキャリアとしての正孔を生成させることにより、低電圧駆動を可能にすることができる。

【0049】正孔輸送層7aの膜厚は、通常、10~300 nm、好ましくは30~100 nmである。このような膜厚の薄い正孔輸送層を一様に形成するためには、

一般に真空蒸着法を採用するのが好適である。

【0050】また、正孔注入効率を更に向上させ、かつ、有機層全体の陽極6への付着力を改善する目的で、図6に示す如く、正孔輸送層7aと陽極6との間に正孔注入層7cを形成することも行われている。正孔注入層7cに用いられる材料としては、イオン化ポテンシャルが低く、導電性が高く、更に陽極6上で熱的に安定な薄膜を形成し得る材料が望ましく、フタロシアニン化合物やボルフィリン化合物（特開昭57-51781号公報、特開昭63-295695号公報）が用いられる。このような正孔注入層7cを介在させることで、初期の素子の駆動電圧が下がると同時に、素子を定電流で連続駆動した時の電圧上昇も抑制される効果が得られる。正孔注入層7cもまた、正孔輸送層7aと同様にしてアクセプタをドーピングすることで導電性を向上させることが可能である。

【0051】正孔注入層7cの膜厚は、通常、2~100nm、好ましくは5~50nmである。このような膜厚の薄い正孔注入層を一様に形成するためには、一般に真空蒸着法を採用するのが好適である。

【0052】正孔輸送層7aの上に形成される電子輸送層7bは、電界が与えられた電極間において、陰極からの電子を効率よく正孔輸送層7aの方向に輸送することができる化合物で構成される。

【0053】電子輸送層7bに用いられる電子輸送性化合物としては、陰極8からの電子注入効率が高く、かつ、注入された電子を効率よく輸送することができる化合物であることが必要である。そのためには、電子親和力が大きく、しかも電子移動度が大きく、更に安定性に優れ、製造時や使用時にトラップとなる不純物が発生しにくい化合物であることが要求される。

【0054】このような条件を満たす材料としては、テトラフェニルブタジエンなどの芳香族化合物（特開昭57-51781号公報）、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体（特開昭59-194393号公報）、シクロペンタジエン誘導体（特開平2-289675号公報）、ペリノン誘導体（特開平2-289676号公報）、オキサジアゾール誘導体（特開平2-216791号公報）、ビスチリルベンゼン誘導体（特開平1-245087号公報、同2-222484号公報）、ペリレン誘導体（特開平2-189890号公報、同3-791号公報）、クマリン化合物（特開平2-191694号公報、同3-792号公報）、希土類錯体（特開平1-256584号公報）、ジスチリルピラジン誘導体（特開平2-252793号公報）、p-フェニレン化合物（特開平3-33183号公報）、チアジアゾロピリジン誘導体（特開平3-37292号公報）、ピロロピリジン誘導体（特開平3-37293号公報）、ナフチリジン誘導体（特開平3-203982号公報）などが挙げられる。

【0055】これらの化合物を用いた電子輸送層7bは、一般に、電子を輸送する役割と、正孔と電子の再結合の際に発光をもたらす役割とを同時に果たすことができる。

【0056】正孔輸送層7aが発光機能を有する場合は、電子輸送層7bは電子を輸送する役割だけを果たす場合もある。

【0057】素子の発光効率を向上させるとともに発光色を変える目的で、例えば、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体をホスト材料として、クマリン等のレーザ用蛍光色素をドーピングすること（J. Appl. Phys., 65巻, 3610頁, 1989年）等も行われているが、本発明においても、上記の有機電子輸送性材料をホスト材料として各種の蛍光色素を 10^{-8} ~10モル%ドーピングすることにより、素子の発光特性をより一層向上させることができる。

【0058】電子輸送層7bの膜厚は、通常、10~200nm、好ましくは30~100nmである。

【0059】電子輸送層も正孔輸送層と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。

【0060】なお、図4に示すような機能分離を行わない単層型の有機発光層7としては、先に挙げたポリ(p-フェニレンビニレン)（Nature, 347巻, 539頁, 1990年他）、ポリ[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン]（Appl. Phys. Lett., 58巻, 1982頁, 1991年他）、ポリ(3-アルキルチオフェン)（Jpn. J. Appl. Phys., 30巻, L1938頁, 1991年他）等の高分子材料や、ポリビニルカルバゾール等の高分子に発光材料と電子移動材料を混合した系（応用物理, 61巻, 1044頁, 1992年）等が挙げられる。

【0061】陰極8は、有機発光層7に電子を注入する役割を果たす。陰極8として用いられる材料は、前記陽極6に使用される材料を用いることが可能であるが、効率よく電子注入を行うには、仕事関数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属又はそれらの合金が好適である。陰極8の膜厚は、通常、陽極6と同程度である。

【0062】低仕事関数金属からなる陰極を保護する目的で、この陰極上に更に、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することにより、素子の安定性を増すことができる。この目的のための金属層には、アルミニウム、銀、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が用いられる。

【0063】なお、図4~6は、本発明で採用される素子本体の一例を示すものであって、本発明は、図示のもの以外に、以下に示すような層構成の素子本体に適用す

ることができる。

【0064】

陽極／正孔輸送層／電子輸送層／界面層／陰極、

陽極／正孔輸送層／電子輸送層／他の電子輸送層／陰極、

陽極／正孔輸送層／電子輸送層／他の電子輸送層／界面層／陰極、

陽極／正孔注入層／正孔輸送層／電子輸送層／界面層／陰極、

陽極／正孔注入層／正孔輸送層／電子輸送層／他の電子輸送層／陰極

上記層構成で、界面層は陰極と有機層とのコンタクトを向上させるためのもので、芳香族ジアミン化合物（特開平6-267658号公報）、キナクリドン化合物（特開平6-330031号公報）、ナフタセン誘導体（特開平6-330032号公報）、有機シリコン化合物（特開平6-325871号公報）、有機リン化合物（特開平6-325872号公報）、N-フェニルカルバゾール骨格を有する化合物（特願平6-199562号）、N-ビニルカルバゾール重合体（特願平6-200942号）等で構成された層が例示できる。界面層の膜厚は、通常、2～100nm、好ましくは5～30nmである。界面層を設ける代わりに、有機発光層及び電子輸送層の陰極界面近傍に上記界面層の材料を50重量%以上含む領域を設けてもよい。

【0065】また、他の電子輸送層は、有機電界発光素子の発光効率を更に向上させるために、電子輸送層の上にさらに積層形成されるものであり、この電子輸送層に用いられる化合物には、陰極からの電子注入が容易で、電子の輸送能力が更に大きいことが要求される。このような電子輸送性材料としては、オキサジアゾール誘導体（Appl. Phys. Lett., 55巻, 1489頁, 1989年他）やそれらをポリメタクリル酸メチル（PMMA）等の樹脂に分散した系（Appl. Phys. Lett., 61巻, 2793頁, 1992年）、フェナントロリン誘導体（特開平5-331459号公報）、又は、n型水素化非晶質炭化シリコン、n型硫化亜鉛、n型セレン化亜鉛等が挙げられる。その他の電子輸送層の膜厚は、通常、5～200nm、好ましくは10～100nmである。

【0066】本発明の有機電界発光素子は、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造の素子のいずれにも適用することができる。

【0067】

【実施例】次に、実施例及び比較例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

【0068】実施例1

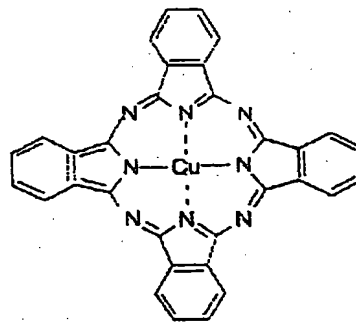
4, 4'-ビス(β-メタクリロイルオキシエチルチ

オ) ジフェニルスルホン100重量部に、光重合開始剤として2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド0.1重量部及びベンゾフェノン0.02重量部を均一に攪拌混合した。この組成物を直径1mmの半球状の凹部が1mmピッチで整列しているマイクロレンズアレイ状の金属板と、1mm厚のシリコンスペーサーを介して設置された平板状のガラス板よりなる型に注入した。そして、ガラス板から50cm上方にある出力80mW/cm²の高圧水銀灯により紫外線を散乱光として3分間照射して、硬化を行った。硬化後、脱型して、硬化物を120℃で1時間アニール処理を行い、片面が凸型のマイクロレンズアレイ構造であり片面が平滑なプラスチックシートを得た。このマイクロレンズアレイシートのレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重は表1に示す通りである。

【0069】このマイクロレンズアレイシートを基板とし、その平滑面側にITO（インジウム・スズ酸化物）を低温にて0.1μmの厚さにスパッタ成膜した。次に、6N塩酸（50℃）のエッチング液を用いて、ITO膜を幅2mmのストライプ状に加工した。このITO基板をUV/O₂洗浄した。その後、真空蒸着装置内に設置して、装置内の真空度が10⁻⁴Pa以下になるまで、液体窒素トラップを備えた油拡散ポンプを用いて排気した後、有機正孔注入層材料として、下記化1に示す銅フタロシアニン系を基板上に20nmの厚さに成膜した。この時の蒸着速度は0.3nm/secであった。

【0070】

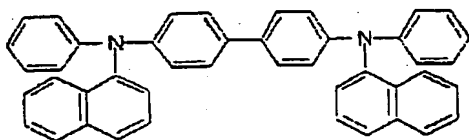
【化1】



【0071】次に、有機正孔輸送材料として、下記化2に示すN, N'-ジフェニル-N, N'-(α-ナフチル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミンをセラムミックルツボに入れ、ルツボの周囲のタンタル線ヒーターで加熱して、蒸着を行った。この時のルツボの温度は160～170℃の範囲で制御した。蒸着時の真空度は10⁻⁴Paで、蒸着時間は3分10秒で、膜厚60nmの有機正孔輸送層を得た。

【0072】

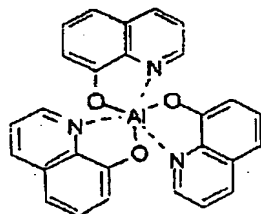
【化2】



【0073】次に、電子輸送層の材料として、下記化3に示すアルミニウムの8-ヒドロキシキノリン錯体A1 (C_9H_6NO) を用いて、上記有機正孔輸送層の上に同様に蒸着を行った。この時のルツボの温度は230～270℃の範囲で制御した。蒸着時の真空度は 2×10^{-6} torr、蒸着時間は3分30秒、得られた電子輸送層の膜厚は75 nmであった。

【0074】

【化3】



【0075】正孔注入層、正孔輸送層及び電子輸送層を形成した基板に、マグネシウムと銀の合金電極 (Mg: Ag = 10:1.5 (原子比)) よりなる陰極を、二元同時蒸着法によって膜厚40 nmとなるように蒸着して形成した。蒸着はモリブデンボードを用いて真空度 2×10^{-4} Pa、蒸着時間4分20秒で行い、光沢のある膜を得た。更に、保護層としてアルミニウムを40 nmの膜厚に蒸着した。

【0076】得られた有機電界発光素子のITO電極側を正極、MgAg合金膜側を陰極として、6Vの直流電圧を印加したところ、 4 mA/cm^2 の電流が流れ、発光した。その時の輝度を測定し、結果を表1に示した。

【0077】実施例2

2 mm径の半球状の凹部が2 mmピッチで整列しているマイクロレンズアレイ用の型を用いたこと以外は実施例1と同様にして、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重のマイクロレンズアレイシートを得、同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0078】実施例3

p-ビス(β-メタクリロイルオキシエチルチオ)キシリレン100重量部に、光重合開始剤として2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド0.1重量部及びベンゾフェノン0.02重量部を加え、均一に攪拌混合した。この組成物を、図3の4に示されるような直径10 μmの光透過部を20 μmピッチで有するネガ型マスクパターン(1.5 mm厚のガラス板にクロム蒸着マスクしたもの)を型の内側にマスク面が

くるように設置)と、1 mm厚のシリコンスペーサーを介して設置された透明なガラス板よりなる型に注入した。この型から50 cm離れて上下にある出力8 mW/cm²の高圧水銀灯のうち、上方よりネガ型マスクパターンを通して紫外線を散乱光として1分間照射し、続いて上下より11分間同時に照射して硬化を行った。その後、脱型した硬化物を120℃で1時間アニール処理し、片面が凸型の、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重のマイクロレンズアレイシートを得た。このシートを基板として用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0079】実施例4

直径50 μmの光透過部を80 μmピッチで有するネガ型マスクパターンを用いたこと以外は実施例3と同様にして、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重のマイクロレンズアレイシートを得た。このシートを基板として用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0080】実施例5

直径100 μmの光透過部を110 μmピッチで有するネガ型マスクパターンを用いたこと以外は実施例3と同様にして、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重のマイクロレンズアレイシートを得た。このシートを基板として用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0081】実施例6

実施例3の手順と同様にしてマイクロレンズアレイシートを作製し、このシートを厚さ1000 μmのガラス板に実施例3で使用した光硬化性液状モノマー組成物を塗布した上に重ね、光硬化することにより貼り合わせて、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重の積層基板を製造した。この積層基板を用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0082】実施例7

実施例3において、光硬化を行った後、クロム蒸着マスクガラスとシリコンスペーサーを除去することにより、厚さ1000 μmのガラス板上にマイクロレンズアレイ層が積層された、表1に示すレンズ径、レンズ部曲率半径、レンズ部ピッチ、厚み、屈折率及び比重の積層基板を製造した。この積層基板を用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0083】比較例1

基板としてマイクロレンズアレイ構造が形成されてい

い両面平滑なガラス板（厚さ、屈折率、比重は表1に示す通り。）を用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を製造し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0084】比較例2

p-ビス（ β -メタクリロイルオキシエチルチオ）キシリレン100重量部に光重合開始剤として2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド0.1重量部及びベンゾフェノン0.02重量部を均一に攪拌混合した。この組成物を厚さ1mmのシリコンスベアサーを挟んだ光学研磨ガラスの型に注入し、ガラス

面より距離40cmで上下にある出力80W/cm²のメタルハライドランプの間にて5分間紫外線を照射した後、脱型し、120℃で1時間アニール処理を行った。このようにしてマイクロレンズアレイ構造を形成せずに作成した硬化物を25mm×75mmのスライドガラス状に切削して、表1に示す厚み、屈折率及び比重のシートを得た。このシートを基板として用いたこと以外は実施例1と同様にして有機電界発光素子を作成し、その輝度の測定を行って結果を表1に示した。

【0085】

【表1】

例	基 板 の 構 造						有機電界発光素子の輝度 [cd/m ²]
	レンズ径 [μ m]	レンズ部 曲率半径 [μ m]	レンズ部 ピッチ [μ m]	厚み [μ m]	屈 折 率	比 重 [g/cc]	
実 施 例	1	1000	500	1000	1.63	1.35	388
	2	2000	1000	2000	1.63	1.35	388
	3	10	42	20	1.59	1.26	144
	4	50	400	80	1.59	1.26	117
	5	100	1250	110	1.59	1.26	109
	6	10	42	20	1.59	1.97	144
	7	10	42	20	1.59	2.01	144
比 較 例	1	—	—	—	1.53	2.76	96
	2	—	—	—	1.59	1.26	96

【0086】

【発明の効果】以上詳述した通り、本発明の有機電界発光素子によれば、マイクロレンズアレイ構造の基板による集光作用で、駆動電圧や色素材料等を変えることなく、高輝度の有機電界発光素子を実現することができる。従って、本発明の有機電界発光素子は、高輝度、低電圧のフラットパネルディスプレイ等を提供するために工業的に極めて有用な技術である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係る基板の構造及び集光作用を説明する模式図である。

【図2】マイクロレンズアレイ構造の形成方法の一例を示す斜視図である。

【図3】従来の基板の発光光線を説明する模式図である。

【図4】本発明の有機電界発光素子の一実施例を示す模式的断面図である。

【図5】本発明の有機電界発光素子の他の実施例を示す模式的断面図である。

【図6】本発明の有機電界発光素子の別の実施例を示す模式的断面図である。

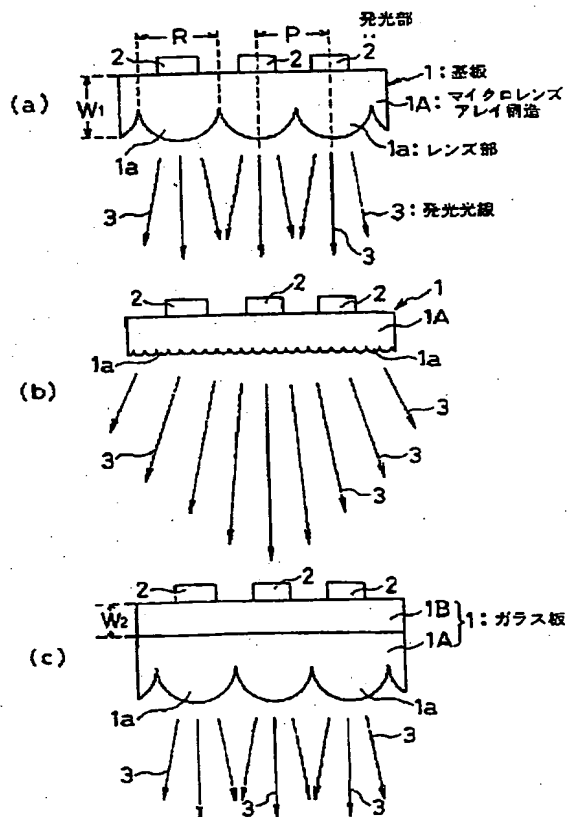
【符号の説明】

- 1 基板
- 1a レンズ部
- 1A マイクロレンズアレイ構造
- 1B ガラス板
- 2 発光部
- 3 発光光線
- 4 ネガ型マスクパターン
- 5 光硬化性液状モノマー組成物
- 6 陽極
- 7 有機発光層
- 7a 正孔輸送層
- 7b 電子輸送層
- 7c 正孔注入層
- 8 陰極
- 10, 10A, 10B 有機電界発光素子

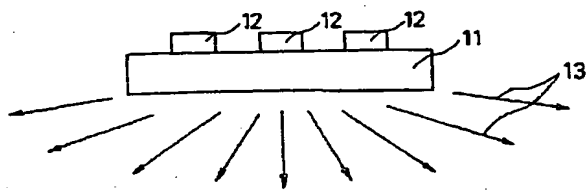
(10)

特開平10-223367

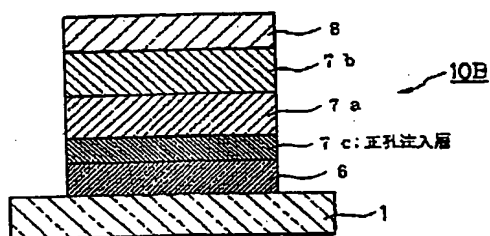
【図1】



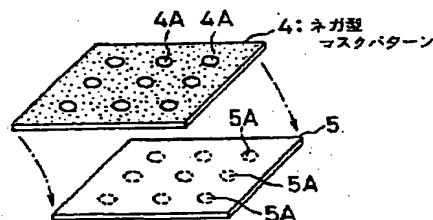
【図3】



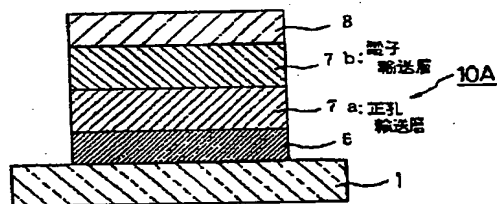
【図6】



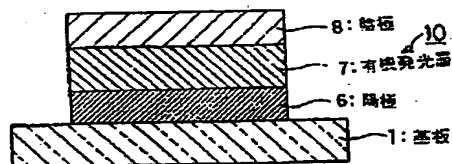
【図2】



【図5】



【図4】



PF030134
US
PAV

Japanese Kokai Patent Application No. Hei 10[1998]-223367

Job No.: 228-107262

Ref.: JP 10-223367/PF030134 US/PAV (LISA)/#6950

Translated from Japanese by the McElroy Translation Company

800-531-9977

customerservice@mcelroytranslation.com

JAPANESE PATENT OFFICE
PATENT JOURNAL (A)
KOKAI PATENT APPLICATION NO. HEI 10[1998]-223367

Int. Cl.⁶: H 05 B 33/02
F 21 V 5/02

Filing No.: Hei 9[1997]-21528

Filing Date: February 4, 1997

Publication Date: August 21, 1998

No. of Claims: 5 (Total of 10 pages; OL)

Examination Request: Not filed

ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

Inventors: Kanko Karasawa
Tsukuba Research Lab, Mitsubishi
Chemical Co., Ltd.
8-3-1 Chuo, Ami-machi,
Ianshiki-gun, Ibaraki-ken

Hiroyuki Kanai
Yokohama General Research Lab,
Mitsubishi Chemical Co., Ltd.
1000 Kamoshita, Aoha-ku,
Yokohama-shi, Kanagawa-ken

Applicant: 000005968
Mitsubishi Chemical Co., Ltd.
2-5-2 Marunouchi, Chiyoda-ku,
Tokyo

Agent: Katashi Omono, patent attorney

[There are no amendments to this patent.]

Abstract

Objective

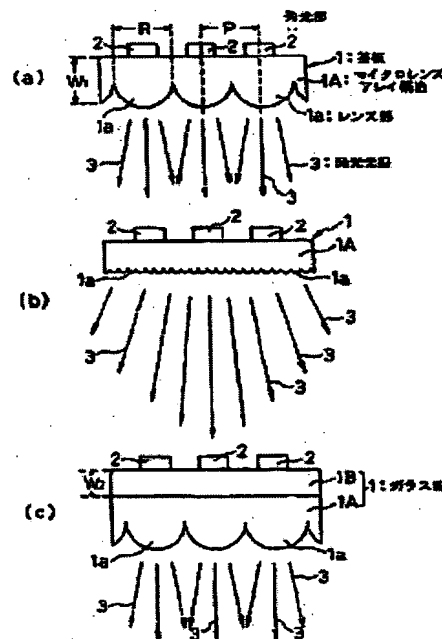
To provide an organic electroluminescence element that is light and can realize high brightness even if driven at low voltage.

Means to solve

In the organic electroluminescence element comprised of substrate, anode, organic luminescent layer, and cathode, a substrate having micro-lens array structure 1A made of a plastic material is used as substrate 1.

Effects

When a conventional plate-shaped substrate is used, the light from the luminescent part passes through the substrate unaffected. On the other hand, if substrate 1 with micro-lens array structure 1A is used, the light 3 from luminescent part 2 is focused in the projecting parts of the micro-lens array. As a result, the brightness can be improved. Also, the weight can be reduced by using the micro-lens array structure 1A made of a plastic material.



- 1 Substrate
- 2 Luminescent part
- 1A Micro-lens array structure
- 1a Lens part

3 Luminescent light
1, 1B, 1A [sic; 1B] Glass plate

Claims

1. An organic electroluminescence element having an anode, organic luminescent layer, and cathode laminated on one side of a substrate, characterized by the fact that the substrate has a micro-lens array structure made of a plastic material.

2. The organic electroluminescence element described in Claim 1 characterized by the fact that the micro-lens array structure is made of a photocurable resin.

3. The organic electroluminescence element described in Claim 2 characterized by the fact that the photocurable resin is obtained by photocuring a photocurable liquid monomer containing a polyfunctional (meth)acrylate compound.

4. The organic electroluminescence element described in any of Claims 1-3 characterized by the fact that the micro-lens array structure is manufactured by exposure via a mask.

5. The organic electroluminescence element described in any of Claims 1-4 characterized by the fact that the substrate has a micro-lens sheet laminated on a glass substrate.

Detailed explanation of the invention

[0001]

Industrial application field

The present invention pertains to an organic electroluminescence element. More specifically, the present invention pertains to an organic electroluminescence element with improved brightness.

[0002]

Prior art

Recently, organic electroluminescence elements have become fairly practical as a result of improvement of the durability and development of the hole transport layer used for realizing full color, the luminescent layer, and other materials and layer structures. However, when the element is driven at low voltage in order to improve the durability or color filters, etc., are used to realize full color, the brightness becomes low. Although efforts have been made in recent years to search for coloring materials with excellent stability at high luminescence efficiency, it has not been possible to obtain a satisfactory organic electroluminescence element simply by using modified coloring materials.

[0003]

Also, a glass substrate is typically used as the substrate for an organic electroluminescence element because of its optical characteristics, mechanical characteristics, and other characteristics. This not only limits development of light and thin organic electroluminescence elements but also causes problems in moldability and processibility during manufacture.

[0004]

Problems to be solved by the invention

A purpose of the present invention is to provide an organic electroluminescence element that can realize high brightness even if driven at low voltage. Another purpose of the present invention is to reduce the weight of the organic electroluminescence element.

[0005]

Means for solving the problems

In order to realize the aforementioned purpose, the present inventors performed extensive research. As a result of this research, it was found that an organic electroluminescence element with light weight, high brightness, and low voltage can be realized by incorporating a micro-lens array structure made of plastic into the organic electroluminescence element.

[0006]

In order to solve the aforementioned problem, the present inventors conducted extensive research. As a result of this research, it is found that an organic electroluminescence element with brightness and low voltage can be realized by incorporating a plastic micro-lens array structure into the organic electroluminescence element. The present invention was achieved based on this research.

[0007]

When a normal plate-shaped substrate is used, the light from the luminescent part passes through the substrate as it is. On the other hand, if a substrate with a micro-lens array structure is used, the light from the luminescent part is focused in the projecting parts of the micro-lens array. As a result, the brightness can be improved. Also, the weight can be reduced by using a micro-lens array structure made of a plastic material.

[0008]

It is preferred to form the micro-lens array structure using a photocurable resin, especially, a photocurable resin obtained by photocuring a photocurable liquid monomer containing polyfunctional (meth)acrylate compound. In this specification, "(meth)acrylate" means "acrylate and/or methacrylate." This is the same for the "(meth)acryloyl" described later.

[0009]

Also, it is preferred to manufacture the micro-lens array structure by means of exposure via a mask.

[0010]

The substrate used in the present invention can be formed by laminating a micro-lens sheet on a glass substrate.

[0011]

Embodiment of the present invention

In the following, the embodiment of the organic electroluminescence element disclosed in the present invention will be explained in detail based on figures.

[0012]

First, the substrate having the micro-lens array structure made of plastic disclosed in the present invention will be explained based on Figures 1, 2.

[0013]

Figures 1(a)-(c) are schematic diagrams explaining the structure and focusing effect of the substrate disclosed in the present invention. Figure 2 is an oblique view illustrating an example of the method for forming the micro-lens array structure.

[0014]

As shown in Figures 1(a)-(c), the micro-lens array structure disclosed in the present invention refers to a structure in which micro-lens parts 1a with arc-shaped cross section are arranged in a planar manner. More specifically, micro-lens parts 1a with diameter (R in Figure 1(a)) in the range of 0.1-10,000 μm , preferably, in the range of 1-5,000 μm are arranged side by side at a pitch in the range of 0.1-10,000 μm , preferably, in the range of 1-5,000 μm (P in Figure 1(a)). The thickness (W_1 in Figure 1(a)) is in the range of 10-10,000 μm , preferably, in the range of 100-2,000 μm .

[0015]

To focus the light, as shown in Figures 1(a)-(c), micro-lens array structure 1A is formed to project to the side opposite the side for forming luminescent part 2 by laminating the anode, organic luminescent layer, and cathode on substrate 1.

[0016]

As shown in Figures 1(a)-(c), the shape of lens part 1a is not limited to a shape having a semicircular cross section. Any projecting lens shape with an arc-shaped cross section is possible. In this case, the curvature radius is in the range of 0.05-13,000,000 μm , preferably, in the range of 0.5-3,000,000 μm . The diameter of the lens is in the range of 0.1-10,000 μm , preferably, in the range of 1-5,000 μm .

[0017]

In the present invention, as shown in Figures 1(a), (b), substrate 1 can be molded from plastic to have micro-lens array structure 1A on one side. As shown in Figure 1(c), it is also possible to form micro-lens array structure 1A made of plastic on glass plate 1B or laminate a sheet of micro-lens array structure 1A manufactured separately on glass plate 1B to form substrate 1. In this case, the thickness W_2 of glass plate 1B is preferably to be in the range of 300-5,000 μm .

[0018]

For the plate-shaped substrate 11 in the conventional organic electroluminescence element as shown in Figure 3, since the light 13 coming from luminescent part 12 passes through the substrate directly, it is diffused directly. On the other hand, for substrate 1 having the micro-lens array structure disclosed in the present invention, as shown in Figures 1(a)-(c), the light 3 coming from luminescent part 2 is focused in part of projecting micro-lens array structure 1A. As a result, the brightness of the organic electroluminescence element can be improved.

[0019]

In the present invention, it is particularly preferred to form the micro-lens array structure with a photocurable resin.

[0020]

The photocurable resin is obtained by photocuring a photocurable liquid monomer composition containing a photocurable liquid monomer, photopolymerization initiator, etc.

[0021]

There is no special limitation on the photocurable liquid monomer as long as it can be polymerized and cured under light irradiation to form a transparent polymer. (Meth)acrylate type compounds are typically used. Examples include triethylene glycol di(meth)acrylate, hexanediol di(meth)acrylate, 2,2-bis[4-(meth)acryloyloxyphenyl]propane, 2,2-bis[4-(2-(meth)acryloyloxyethoxy)]phenylpropane, p-bis[β -(meth)acryloyloxyethylthio]xylylene, 4,4'-bis[β -(meth)acryloyloxyethylthio]diphenyl sulfone, trimethylolpropane tri(meth)acrylate, urethane acrylate, epoxyacrylate, and other polyfunctional (meth)acrylates, and mixtures of these monomers and monofunctional monomers copolymerizable with the aforementioned monomers, and mixtures of the aforementioned polyfunctional (meth)acrylate compounds and polythiols addition polymerizable with said polyfunctional (meth)acrylate compounds. Examples of the aforementioned monofunctional monomers include methyl (meth)acrylate, benzyl (meth)acrylate, etc. Examples of polythiols include pentaerythritol tetrakis(β -thiopropionate), tris[2-(β -thiopropionyloxy)ethyl] isocyanurate, etc.

[0022]

Among said examples, it is preferred to use monomers that can generate polymers with a refractive index (with respect to air) of 1.50 or higher, preferably, 1.55 or higher, more preferably, 1.58 or higher.

[0023]

The conventional photopolymerization initiators used for curing the aforementioned photocurable liquid monomers can be used in the present invention. They can also be used as a mixture of two or more types. Examples include 2,4,6-trimethylbenzoyldiphenylphosphine oxide, trimethylbenzoylphenylphosphinic methyl ester, 1-hydroxycyclohexyl phenyl ketone, benzophenone, diphenoxybenzophenone, etc.

[0024]

When photocuring and thermocuring are combined in order to complete the curing quickly, benzoyl peroxide, diisopropyl peroxydicarbonate, t-butylperoxide (2-ethyl hexanoate), or other well-known thermal polymerization initiators can be added.

[0025]

If necessary, it is also possible to add antioxidants, UV absorbents, coloring agents, etc., to the photocurable liquid monomer composition.

[0026]

To form the micro-lens array structure made of a photocurable resin by means of photocuring, for example, the aforementioned photocurable liquid monomer composition can be fed into a plate-shaped die with micro-lens array structure in part of it, followed by exposure. More specifically, the photocurable liquid monomer composition is fed into the space between a plate having a micro-lens array shape and a flat plate and is photocured by irradiating light from the side of the flat plate. The micro-lens array structure is formed on the side of the plate with the micro-lens array shape on the photocured resin molding. (This method is referred to as "die transfer method" hereinafter.)

[0027]

In this case, as shown in Figure 2, a micro-lens array structure having smaller lens part 5A can be formed by using a negative mask pattern 4, which only allows light to pass through part 4A corresponding to the lens part to be formed instead of the plate with the micro-lens array shape, and by exposing photocurable liquid monomer composition 5. In other words, said negative mask pattern 4 is used to block more light in the area where lens 5A made of photocurable liquid monomer composition 5 is formed than the light in other areas. In this way, lens 5A swelling in that area can be formed as to be described later (this method is referred to as "partial light irradiation method" hereinafter). The partial light irradiation method using said negative mask pattern 4 can be carried out as a two-step exposure method, in which exposure is performed via said negative mask pattern 4 in the first step, followed by full surface exposure (exposure on the entire surface except for mask pattern 4 or exposure from the reverse side) in the second step. It is also possible to perform exposure from the side of mask pattern 4 and the reverse side at the same time.

[0028]

The negative mask pattern used in the partial light irradiation method can be obtained using an appropriate method, such as photolithography, vapor deposition, printing, etc. It is preferred to use a glass plate as the substrate that carries the mask pattern. However, it is also possible to use polymer film or a substrate made of paper. Said polymer film or paper can also be adhered to glass or other solid material. The mask surface where the pattern is drawn can be arranged either on the inner surface or the outer surface of the die, into which the liquid will be injected. In order to obtain a good pattern transferability, it is preferred to arrange the mask surface on the inner side, that is, the side having contact with the photocurable liquid monomer composition. In this case, it is preferred to use a chromium-deposited mask made of glass in

consideration of recycling of the mask without being penetrated by the photocurable liquid monomer composition.

[0029]

During photopolymerization of the photocurable liquid monomer composition, curing shrinkage occurs in company with increase of the degree of polymerization under light irradiation. Consequently, when partial light irradiation is performed via the negative mask pattern, the part not masked and irradiated by the light is first cured and affected by said curing shrinkage. The masked part not irradiated by the light or the part irradiated by less light becomes recessed. In other words, the non-masked part forms a projecting part. The projecting part becomes a spherical or nonspherical (similar to spherical shape) lens part since the light also returns to the masked part as a result of the refraction phenomenon occurring as the irradiating light passes through the mask.

[0030]

Consequently, after the uneven pattern is formed on the surface by means of partial light irradiation, curing can be completed by irradiating light on the entire surface except for the negative mask pattern to obtain the final micro-lens array structure. Alternately, glass or other material that allows transmission of light is used for the die arranged on the opposite side of the negative mask pattern via the photocurable liquid monomer composition, and light is irradiated from the side of the die on the entire surface to complete curing. In this case, it is also possible to form the uneven pattern on one side and cure the entire surface at the same time.

[0031]

In both the aforementioned die transfer method and partial light irradiation method, the light source should be selected appropriately depending on the photocurable liquid monomer composition and the characteristic application example of the photopolymerization initiator. A high pressure mercury lamp, metal halide lamp, short arc lamp, and other UV light sources are typically used as the light source to emit parallel light, scattered light, etc. It is also possible to use a laser or other visible light source, infrared light source, etc., in combination with photosensitizer.

[0032]

In order to accelerate the curing during light irradiation, it is also possible to heat the entire die, into which the liquid is injected, or add a thermopolymerization initiator to accelerate the curing process.

[0033]

To further reduce optical strain, it is also possible to perform annealing by means of low heating after the curing. Hard coating, antireflection coating, or other surface treatment can also be performed.

[0034]

In the following, the configuration of the organic electroluminescence element disclosed in the present invention using a substrate having the aforementioned micro-lens array structure made of plastic will be explained based on Figures 4-6.

[0035]

Figures 4-6 are schematic cross-sectional views illustrating configuration examples of the organic electroluminescence element of the present invention. In the figures, 1 represents a substrate, 6 represents an anode, 7 represents an organic luminescent layer, 7a represents a hole transport layer, 7b represents an electron transport layer, 7c represents a hole injection layer, 8 represents a cathode, 10, 10A, 10B represent organic electroluminescence elements.

[0036]

Substrate 1 serves as the support for the organic electroluminescence element. It is required to have excellent optical characteristics, heat resistance, surface accuracy, mechanical strength, light weight, gas barrier property, etc.

[0037]

In the present invention, a micro-lens array structure made of plastic with excellent characteristics or a laminate of a glass plate and the micro-lens array structure is used as substrate 1 as shown in Figures 1(a)-(c).

[0038]

It is also possible to form a compact silicon oxide film, etc., at least on one side of the substrate in order to improve the gas barrier property.

[0039]

Anode 6 formed on substrate 1 is used to inject holes into organic luminescent layer 7. Said anode 6 is usually made of aluminum, gold, silver, platinum, nickel, palladium, platinum, or another metal, indium and/or tin oxide or another metal oxide, copper iodide or another metal

halide, carbon black, or poly(3-methylthiophene), polypyrrole, polyaniline, or another electroconductive polymer. It is preferred to use polypyrrole, indium/tin oxide. Anode 6 is usually formed by means of sputtering or vacuum deposition. When fine particles of silver or another metal, fine particles of copper iodide, etc., carbon black, fine particles of electroconductive metal oxide, fine powder of electroconductive polymer, etc., are used, it is also possible to disperse the material in an appropriate binder resin solution, which is then coated on substrate 1 to form anode 6. Also, when an electroconductive polymer is used, it is also possible to form anode 6 by directly forming a thin film on substrate 1 by means of electrolytic polymerization or by coating the electroconductive polymer on substrate 1 (Appl. Phys. Lett., Vol 60, p. 2711, 1992). It is also possible to form anode 6 by laminating different substances.

[0040]

The thickness of anode 6 varies depending on the requirement of transparency. If transparency is required, the transmissivity of the visible light is usually 60% or higher, preferably, 80% or higher. In this case, the thickness of the anode is usually in the range of 5-1000 nm, preferably, in the range of 10-500 nm. If anode 6 can be opaque, it can be made of the same material as substrate 1. It is also possible to laminate different electroconductive materials on anode 6.

[0041]

The organic luminescent layer 7 formed on anode 6 is made of a material that can efficiently transport and recouple the holes injected from anode 6 and the electrons injected from cathode 8 and can generate light efficiently as a result of the recoupling between the electrodes to which an electric field is applied. In order to improve the light generating efficiency of organic luminescent layer 7, the layer is usually divided into a hole transport layer 7a and an electron transport layer 7b as shown in Figure 5 (Appl. Phys. Lett., Vol. 51, p. 913, 1987).

[0042]

For the functionally separated organic electroluminescence element 10A shown in Figure 5, it is necessary to form hole transport layer 7a with a material that has high hole injection efficiency from anode 6 and can efficiently transport the injected holes. Consequently, the ionization potential should be small, and the hole mobility should be high. Also, the material is required to have excellent stability and be difficult to generate impurities that will become traps during manufacture or use.

[0043]

Examples of such hole transport materials include 1,1-bis(4-di-p-triaminophenyl)cyclohexane or other aromatic diamine compounds formed by connecting aromatic tertiary amine units (Japanese Kokai Patent Application No. Sho 59[1984]-194393), 4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino]biphenyl or other aromatic amines containing two or more tertiary amines and having two or more condensed aromatic rings substituted by nitrogen atoms (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-234681), aromatic triamine as derivatives of triphenylbenzene and having a starburst structure (US Patent No. 4,923,774), N,N'-diphenyl-N,N'-bis(3-methylphenyl)biphenyl-4,4'-diamine or other aromatic diamines (US Patent No. 4,764,625), $\alpha,\alpha,\alpha',\alpha'$ -tetramethyl- α,α' -bis(4-di-p-triylaminophenyl)-p-xylene (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 3[1991]-269084), triphenylamine derivative whose entire molecule is three-dimensionally asymmetric (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-129271), compounds having plural aromatic diamino groups substituted by pyrenyl groups (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-175395), aromatic diamines having aromatic tertiary amine units connected by ethylene groups (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-264189), aromatic diamines having a styryl structure (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-290851), compounds formed by connecting aromatic tertiary amine units with thiophene groups (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-304466), starburst type aromatic triamines (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-308688), benzylphenyl compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-364153), compounds formed by connecting a tertiary amine with fluorene groups (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-25473), triamine compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-239455), bisdipyridylaminobiphenyl (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-320634), N,N,N-triphenylamine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-1972), aromatic diamines having a phenoxazine structure (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 7[1995]-138562), diaminophenylphenanetiazine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 7[1995]-252474), hydrazone compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-311591), silazane compounds (US Patent No. 4,950,950), silanamine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-49079), phosphamine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-25659), quinacridone compounds, etc. These compounds can be used either alone or, if necessary, as a mixture of two or more types.

[0044]

In addition to the aforementioned compounds, it is also possible to use polyvinylcarbazole or polysilane (Appl. Phys. Lett., Vol 59, p. 2760, 1991), polyphosphazene

(Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-310949), polyamide (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-310949), polyvinyltriphenylamine (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 7[1995]-53953), polymer having a triphenylamine skeleton (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-133065), polymer formed by connecting triphenylamine units with methylene groups (Synthetic Metals, Vol. 55-57, p. 4163, 1993), polymethacrylate containing an aromatic amine (J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed., Vo. 21, p. 969, 1983), or other polymeric materials can be used as the material for hole transport layer 71.

[0045]

Hole transport layer 7a is laminated on said anode 6 by forming films of the aforementioned hole transport materials by means of coating or vacuum deposition.

[0046]

If the coating method is used, one or several types of the hole transport materials and, if necessary, a binder resin, coating property modifier, or other additives absent in the traps of the holes are added and dissolved in a solvent to prepare a coating solution. The coating solution is coated on anode 6 by spin coating, etc., and then dried to form organic hole transport layer 7a. In this case, polycarbonate, polyacrylate, polyester, etc., can be used as the binder resin. Since the mobility of the holes decreases as the amount of binder resin added is increased, a small amount of binder resin is desired, preferably 50 wt% or less.

[0047]

On the other hand, if vacuum deposition is used, the hole transport material is added to a crucible set in a vacuum container. After the vacuum container is evacuated to about 10^{-4} Pa using an appropriate vacuum pump, the crucible is heated to evaporate the hole transport material to form hole transport layer 7a on anode 6 on substrate 1 set opposite to the crucible.

[0048]

When hole transport layer 7a is formed as described above, metal complexes and/or metal salts of aromatic carboxylic acids (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 4[1992]-32084), benzophenone derivatives and thiobenzophenone derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-295361), furalene (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-331458), etc., can be doped at a concentration of 10^{-3} –10 wt% as acceptors to generate holes as free carriers. In this way, the element can be driven at a low voltage.

[0049]

The thickness of hole transport layer 7a is usually in the range of 10-300 nm, preferably, in the range of 30-100 nm. In order to form the hole transport layer with the aforementioned thickness uniformly, it is typically preferred to use vacuum deposition.

[0050]

Also, in order to increase the hole injection efficiency and improve the adhesion of the entire organic layer to anode 6, a hole injection layer 7c can be formed between hole transport layer 7a and anode 6 as shown in Figure 6. It is preferred to use a material that has a low ionization potential, high electroconductivity and can form a thermally stable thin film on anode 6, to form hole injection layer 7c. Examples of such material include phthalocyanine compounds or porphyrin compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Sho 57[1982]-51781, Sho 63[1988]-295695). When said hole injection layer 7c is formed, the initial driving voltage for the element is lowered. In the meantime, the voltage rise occurring when the element is driven continuously at a constant current can be limited. The electroconductivity of hole injection layer 7c can also be improved by doping acceptors in the same way as for hole transport layer 7a.

[0051]

The thickness of hole injection layer 7c is usually in the range of 2-100 nm, preferably, in the range of 5-50 nm. In order to form the hole injection layer with the aforementioned thickness uniformly, it is usually preferred to use vacuum deposition.

[0052]

The electron transport layer 7b formed on hole transport layer 7a is made of a compound that can efficiently transport electrons from the cathode in the direction of hole transport layer 7a between the electrodes to which an electric field is applied.

[0053]

The electron transport compound used for electron transport layer 7b must be able to inject electrons efficiently from cathode 8 and transport the injected electrons efficiently. Consequently, the compound is required to have high electron affinity, high electron mobility, excellent stability and is difficult to generate impurities that will become traps during manufacture or use.

[0054]

Examples of compounds that satisfy the aforementioned conditions include tetraphenylbutadiene or other aromatic compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Sho 57[1982]-51781), aluminum complex of 8-hydroxyquinoline or other metal complexes (Japanese Kokai Patent Application No. Sho 59[1984]-194393), cyclopentadiene derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-289675), perinone derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-289676), oxadiazole derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-216791), bisstyrylbenzene derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 1[1989]-245087, Hei 2[1990]-222484), perylene derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-189890, Hei 3[1991]-791), coumarin compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 2[1990]-191694, Hei 3[1991]-792), rare earth complexes (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 1[1989]-256584), distyrylpyrazine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. 2[1990]-252793), p-phenylene compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 3[1991]-33183), thiadiazolopyridine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 3[1991]-37292), pyrrolopyridine derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 3[1991]-37293), naphthylidene derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 3[1991]-203982), etc.

[0055]

Electron transport layer 7b using the aforementioned compounds is typically used to transport electrons and generate light when recoupling holes and electrons at the same time.

[0056]

If hole transport layer 7a has a luminescence function, electron transport layer 7b may only have the electron transport function.

[0057]

In order to improve the light-emitting efficiency of the element and change the light of the generated light, for example, the aluminum complex of 8-hydroxyquinoline can be used as the host material, and coumarin or other fluorescent coloring material for lasers can be doped (J. Appl. Phys., Vol. 65, p. 3610, 1989). In the present invention, the light-emitting characteristic of the element can also be further improved by using the aforementioned organic electron transport materials as host material and doping various types of fluorescent coloring materials at 10^{-3} –10 mol%.

[0058]

The thickness of the electron transport layer 7b is usually in the range of 10-200 nm, preferably, in the range of 30-100 nm.

[0059]

The electron transport layer can be formed in the same way as the hole transport layer. Vacuum deposition is typically used.

[0060]

Examples of single organic luminescent layer 7 shown in Figure 4 without function separation are formed by mixing the aforementioned poly(p-phenylenevinylene) (Nature, Vol. 347, p. 539, 1990, etc.), poly[2-methoxy-5-(2-ethylhexyloxy)-1,4-phenylenevinylene] (Appl. Phys. Leftt., Vol. 58, p. 1982, 1991, etc.), poly(3-alkylthiophene) (Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 30, p. L1938, 1991, etc.), or another polymeric material, or polyvinylcarbazole or another polymeric material with a luminescent material and an electron transport material (Application Physics, Vol. 61, p. 1044, 1992).

[0061]

Cathode 8 is used to inject electrons into organic luminescent layer 7. The materials used for said anode 6 can be used as the materials of cathode 8. However, in order to inject electrons efficiently, it is preferred to use a metal with low work function, such as tin, magnesium, indium, calcium, aluminum, silver, etc., or their alloys. The thickness of cathode 8 is on the same level as that of anode 6.

[0062]

In order to protect the cathode made of a metal with low work function, it is also possible to laminate a layer of metal with a high work function and high stability to air on the cathode to improve the stability of the element. Said metal layer can be made of aluminum, silver, nickel, chromium, gold, platinum, etc.

[0063]

Figures 4-6 show an example of the main body element to which the present invention is applied. Besides the main body element shown in these figures, the present invention can also be applied to a main body element with the following layer structure.

[0064]

Anode/hole transport layer/electron transport layer/interfacial layer/cathode
Anode/hole transport layer/electron transport layer/another electron transport layer/cathode

Anode/hole transport layer/electron transport layer/another electron transport layer/interfacial layer/cathode

Anode/hole injection layer/hole transport layer/electron transport layer/interfacial layer/cathode

Anode/hole injection layer/hole transport layer/electron transport layer/another electron transport layer/cathode

In the aforementioned structures, the interfacial layer is used to improve contact between the cathode and the organic layer. It can be made of aromatic diamine compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-267658), quinacridone compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-330031), naphthacene compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-330032), organic silicon compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-325871), organic phosphorous compounds (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 6[1994]-325872), compounds having an N-phenylcarbazole skeleton (Japanese Patent Application No. Hei 6[1994]-199562), N-vinylcarbazole polymers (Japanese Patent Application No. Hei 6[1994]-200942), etc. The thickness of the interfacial layer is usually in the range of 2-100 nm, preferably, in the range of 5-30 nm. Instead of the interfacial layer, it is also possible to form regions containing 50 wt% or more of the aforementioned materials used for the interfacial layer near the cathode interfaces of the organic luminescent layer and the electron transport layer.

[0065]

Also, said other electron transport layer is laminated on the electron transport layer in order to further improve the light-emitting efficiency of the organic electroluminescence element. The compounds used for such an electron transport layer are required to allow easy injection of electrons from the cathode and even higher electron transport capability. Examples of such an electron transport material include oxadiazole derivatives (Appl. Phys. Lett., Vol. 55, p. 1489, 1989, etc.) or systems obtained by dispersing the aforementioned oxadiazole derivatives in poly(methyl methacrylate) (PMMA) or other resins (Appl. Phys. Lett., Vol. 61, p. 2793, 1992), phenanthroline derivatives (Japanese Kokai Patent Application No. Hei 5[1993]-331459), or n-type hydrogenated amorphous silicon carbide, n-type zinc sulfide, n-type zinc selenide, etc. The thickness of said another electron transport layer is usually in the range of 5-200 nm, preferably, in the range of 10-100 nm.

[0066]

The organic electroluminescence element of the present invention can be a single element, an element with a structure arranged in an array form, or an element with a structure in which the anode and cathode are arranged in an X-Y matrix form.

[0067]

Application examples

In the following, the present invention will be explained in more detail with reference to application examples and comparative examples. The present invention, however, is not limited to the application examples described below.

[0068]

Application Example 1

Used as photopolymerization initiators, 0.1 part by weight of 2,4,6-trimethylbenzoyldiphenylphosphine oxide and 0.02 part by weight of benzophenone were blended homogeneously in 100 parts by weight of 4,4'-bis(β -methacryloyloxyethylthio)diphenyl sulfone. The obtained composition was injected into a die comprised of a metal plate having such a micro-lens array shape that semispherical recessed parts with diameters of 1 mm were arranged at pitches of 1 mm and a flat glass plate with 1-mm-thick silicon spacers were arranged between the plates. The die was irradiated for 3 min by UV light as scattered light emitted from a high-pressure mercury lamp with an output of 80 mW/cm² set 50 cm above the glass plate to cure the composition. After curing, the die was removed, and the cured composition was annealed at 120°C for 1 h to obtain a plastic sheet with a projecting micro-lens array structure on one side and smooth surface on the other side. Table 1 shows the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight of the micro-lens array sheet.

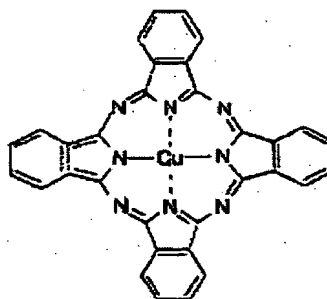
[0069]

With the micro-lens array sheet used as a substrate, an ITO (indium/tin oxide) film with a thickness of 0.1 μ m was formed by means of sputtering on its smooth surface. Then, an etching solution of 6N hydrochloric acid (50°C) was used to process the ITO film into 2-mm strips. The ITO substrate was washed with UV/O₃. After that, the substrate was set in a vacuum deposition apparatus, which was evacuated using an oil diffusion pump equipped with liquid nitrogen trap until the vacuum degree in the apparatus was 10⁻⁴ Pa. Then, copper phthalocyanine represented

by the following structure 1 was used as the material for organic hole injection layer to form a 20-nm-thick film on the substrate. The deposition rate was 0.3 nm/sec.

[0070]

[Structure 1]

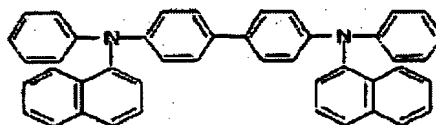


[0071]

Then, used as the organic hole transport material, N,N'-diphenyl-N,N'-(α -naphthyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine represented by the following structure 2 was added to a ceramic crucible, which was heated by tantalum wire heater to perform deposition. The temperature of the crucible was kept in the range of 160-170°C. The vacuum degree during deposition was 10^{-4} Pa. The deposition time was 3 min 10 sec. As a result, an organic hole transport layer with a thickness of 60 nm was obtained.

[0072]

Structure 2

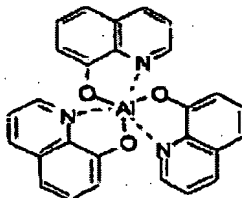


[0073]

Then, an 8-hydroxyquinoline complex $\text{Al}(\text{C}_9\text{H}_6\text{NO})_3$ of aluminum represented by the following structure 3 was used as the material for the electron transport material to perform deposition in the same way on the aforementioned organic hole transport layer. The temperature of the crucible was kept in the range of 230-270°C. The vacuum degree during deposition was 2×10^{-6} torr. The deposition time was 3 min 30 sec. As a result, an electron transport layer with a thickness of 75 nm was obtained.

[0074]

Structure 3



[0075]

A cathode made of an alloy electrode of magnesium and silver (Mg:Ag = 10:1.5 (atomic ratio)) was formed by means of deposition to a thickness of 40 nm using the simultaneous two-dimensional deposition method on the substrate, whereon the hole injection layer, the hole transport layer, and the electron transport layer had been formed. Deposition was carried out using a molybdenum board at a vacuum degree of 2×10^{-4} Pa for 4 min 20 sec. As a result, a glossy film was formed. After that, aluminum was deposited to a thickness of 40 nm to form a protective layer.

[0076]

When a DV voltage of 6 V was applied with the ITO electrode side of the obtained organic electroluminescence element used as the anode and the MgAg alloy film side used as the cathode, a current of 4 mA/cm^2 occurred, and light was emitted. The brightness at that time was measured. The results are shown in Table 2.

[0077]

Application Example 2

The process was carried in the same way as described in Application Example 1 except for using a micro-lens array die with semispherical recessed parts with a diameter of 2 mm arranged at pitches of 2 mm. As a result, a micro-lens array sheet with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1 was obtained. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0078]

Application Example 3

Used as photopolymerization initiators, 0.1 part by weight of 2,4,6-trimethylbenzoyldiphenylphosphine oxide and 0.02 part by weight of benzophenone were

blended homogeneously in 100 parts by weight of p-bis(β -methacryloyloxyethylthio)xylylene. The obtained composition was injected into a die comprised of a negative mask pattern having 10- μm - ϕ light transmitting parts arranged at pitches of 20 μm as shown by 4 in Figure 3 (arranged such that the mask side was on the inner side of a die with a mask formed by depositing chromium on a 1.5-mm-thick glass plate) and a transparent glass plate with 1-mm-thick silicon spacers arranged between the plates. The die was irradiated by high-pressure mercury lamps with outputs of 8 mW/cm² set 50 cm below and above the glass plate. The die was first irradiated by the scattered UV light from the lamp above the die through the negative mask pattern for 1 min, followed by irradiation by the lamps above and below the die simultaneously for 11 min. After curing, the die was removed, and the cured composition was annealed at 120°C for 1 h to obtain a micro-lens array sheet with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned sheet as the substrate. Table 1 shows the results of measuring the brightness.

[0079]

Application Example 4

The process was carried out in the same way as described in Application Example 3 except for using a negative mask pattern having 50- μm - ϕ light transmitting parts at pitches of 80 μm . As a result, a micro-lens array sheet with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1 was obtained. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned sheet as the substrate. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0080]

Application Example 5

The process was carried out in the same way as described in Application Example 3 except for using a negative mask pattern having 100- μm - ϕ light transmitting parts at pitches of 110 μm . As a result, a micro-lens array sheet with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1 was obtained. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned sheet as the substrate. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0081]

Application Example 6

A micro-lens array sheet was manufactured in the same way as described in Application Example 3. The sheet was superposed on the coating of the photocurable liquid monomer composition used in Application Example 3 on a 1000- μm -thick glass plate, followed by photocuring. As a result, a laminated substrate with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1 was obtained. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned laminated substrate. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0082]

Application Example 7

In Application Example 3, after photocuring, the chromium deposited mask and the silicon spacers were removed, and a micro-lens array layer is laminated on the 1000- μm -thick glass plate. As a result, a laminated substrate with the lens diameter, curvature radius of the lens part, pitch of the lens part, thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1 was obtained. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned laminated substrate. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0083]

Comparative Example 1

An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using a smooth glass plate (thickness, refractive index, and specific weight are shown in Table 1) without micro-lens array structure as the substrate. The results of measuring the brightness are shown in Table 1.

[0084]

Comparative Example 2

Used as photopolymerization initiators, 0.1 part by weight of 2,4,6-trimethylbenzoyldiphenylphosphine oxide and 0.02 part by weight of benzophenone were blended homogeneously in 100 parts by weight of p-bis(β -methacryloyloxyethylthio)xylylene. The obtained composition was injected into dies made of polished optical glass with 1-mm-thick silicon spacers sandwiched between them. The dies were irradiated by metal halide lamps with outputs of 80 W/cm² set 40 cm below and above the glass surface for 5 min. Then, the dies were

removed, followed by an annealing treatment performed at 120°C for 1 h. The cured composition without micro-lens array structure was cut into a slide glass shape of 25 mm x 75 mm to obtain a sheet with the thickness, refractive index, and specific weight shown in Table 1. An organic electroluminescence element was manufactured in the same way as described in Application Example 1 except for using the aforementioned sheet as the substrate. Table 1 shows the results of measuring the brightness.

[0085]

Table 1

① 例	④ 基 板 の 構 造						有機電界発光素子の 輝 度 ⑪ [cd/m ²]
	⑤ レンズ径 [μm]	⑥ レンズ部 曲率半径 [μm]	⑦ レンズ部 ピッチ [μm]	⑧ 厚み [μm]	⑨ 屈 折 率	⑩ 比重 [g/cc]	
② 実 施 例	1	1000	500	1000	1.63	1.35	388
	2	2000	1000	2000	1.63	1.35	388
	3	10	42	20	1.59	1.26	144
	4	50	400	80	1.59	1.26	117
	5	100	1250	110	1.59	1.26	109
	6	10	42	2100	1.59	1.97	144
	7	10	42	2000	1.59	2.01	144
③ 比 較 例	1	—	—	1000	1.58	2.76	96
	2	—	—	1000	1.59	1.26	96

- Key:
- 1 Example
 - 2 Application Example
 - 3 Comparative Example
 - 4 Structure of the substrate
 - 5 Lens diameter
 - 6 Curvature radius of the lens part
 - 7 Pitch of the lens parts
 - 8 Thickness
 - 9 Refractive index
 - 10 Specific weight
 - 11 Brightness of organic electroluminescence element

[0086]

Effects of the invention

As described above, according to the present invention, a high-brightness organic electroluminescence element can be realized without changing the driving voltage or coloring material depending on the focusing function realized by the substrate with the micro-lens array structure. Consequently, the organic electroluminescence element of the present invention is very useful in the industrial field for supplying flat panel displays of high brightness and low voltage, etc.

Brief description of the figures

Figure 1 is a schematic diagram explaining the structure and focusing function of the substrate used in the present invention.

Figure 2 is an oblique view illustrating an example of the method for forming the micro-lens array structure.

Figure 3 is a schematic diagram illustrating the emitted light of the conventional substrate.

Figure 4 is a schematic cross-sectional view illustrating an application example of the organic electroluminescence element of the present invention.

Figure 5 is a schematic cross-sectional view illustrating another application example of the organic electroluminescence element of the present invention.

Figure 6 is a schematic cross-sectional view illustrating yet another application example of the organic electroluminescence element of the present invention.

Explanation of symbols

1	Substrate
1a	Lens part
1A	Micro-lens array structure
1B	Glass plate
2	Luminescent part
3	Generated light
4	Negative mask pattern
5	Photocurable liquid monomer composition
6	Anode
7	Organic luminescent layer
7a	Hole transport layer
7b	Electron transport layer

- 7c Hole injection layer
 8 Cathode
 10, 10A, 10B Organic electroluminescence element

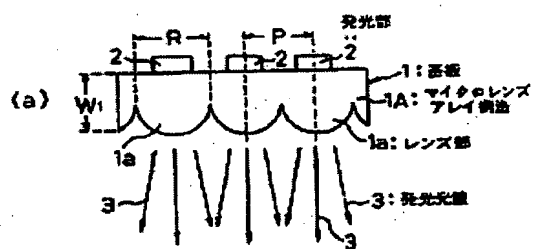


Figure 1(a)

- Key: 1 Substrate
 1a Lens part
 1A Micro-lens array structure
 2 Luminescent part
 3 Generated light

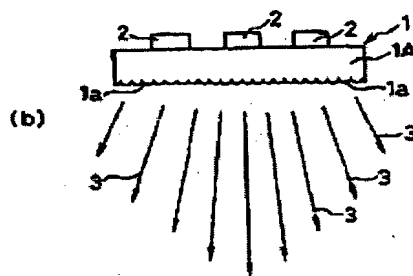


Figure 1(b)

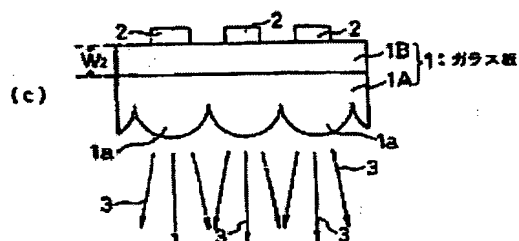


Figure 1(c)

- Key: 1 Glass plate

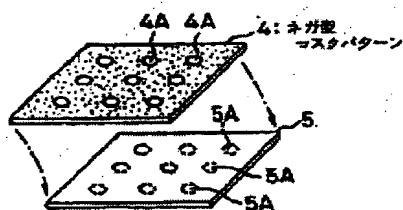


Figure 2

Key: 4 Negative mask pattern

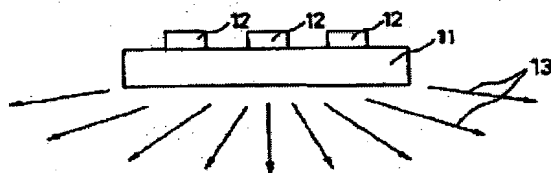


Figure 3

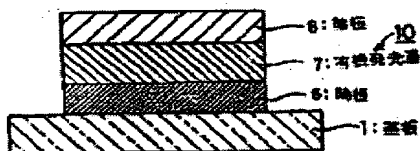


Figure 4

Key: 1 Substrate
6 Anode
7 Organic luminescent layer
8 Cathode

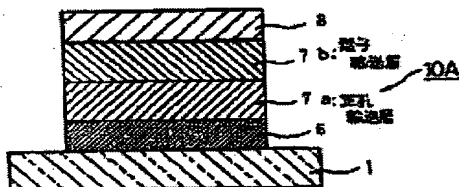


Figure 5

Key: 7a Hole transport layer

7b Electron transport layer

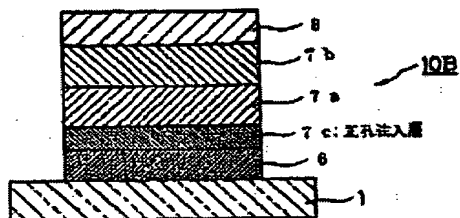


Figure 6

Key: 7c Hole injecting layer